WELTORGANISATION FÜR GEISTIGES EIGENTUM Internationales Büro

INTERNATIONALE ANMELDUNG VERÖFFENTLICHT NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT)

(51) Internationale Patentklassifikation 7:

C08J 9/00, C08K 3/08, C08J 9/16 // C08L 25706

(11) Internationale Veröffentlichungsnummer: WO 00/43442 A1

(43) Internationales Veröffentlichungsdatum:

27. Juli 2000 (27.07.00)

(21) Internationales Aktenzeichen:

PCT/AT00/00013

(22) Internationales Anmeldedatum: 20. Januar 2000 (20.01.00)

(30) Prioritätsdaten:

A 99/99

25. Januar 1999 (25.01.99)

AT

(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US): SUNPOR KUNSTSTOFF GES.MBH [AT/AT]; Stattersorfer Hauptstrasse 48, A-3100 St. Pölten (AT).

(72) Erfinder; und

- (75) Erfinder/Anmelder (nur für US): EBERSTALLER, Roman [AT/AT]; Fabrikgasse 11, A-3200 Obergrafendorf ARDUINI-SCHUSTER, Mariacarla [DE/DE]; Theodor-Heuss-Strasse 3, D-97273 Kürnach (DE). KUHN, Joachim [DE/DE]; Wölffelstrasse 4, D-97072 Würzburg (DE).
- (74) Anwälte: WILDHACK, Helmut usw.; Landstrasser Hauptstrasse 50, A-1030 Wien (AT).

AE, AL, AM, AT, (81) Bestimmungsstaaten: AT (Gebrauchsmuster), AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, CA, CH, CN, CU, CZ, CZ (Gebrauchsmuster), DE, DE (Gebrauchsmuster), DK, DK (Gebrauchsmuster), EE, EE (Gebrauchsmuster), ES, FI, FI (Gebrauchsmuster), GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MD, MG, MK, MN, MW, MX, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SK (Gebrauchsmuster), SL, TJ, TM, TR, TT, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZW, ARIPO Patent (GH, GM, KE, LS, MW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

Veröffentlicht

Mit internationalem Recherchenbericht. Vor Ablauf der für Änderungen der Ansprüche zugelassenen Frist; Veröffentlichung wird wiederholt falls Änderungen eintreffen.

- (54) Title: PARTICLE-SHAPED, EXPANDABLE STYROL POLYMERS AND METHOD FOR THE PRODUCTION THEREOF
- (54) Bezeichnung: TEILCHENFÖRMIGE, EXPANDIERBARE STYROLPOLYMERISATE UND VERFAHREN ZU IHRER HERSTEL-LUNG

(57) Abstract

The invention relates to particle-shaped expandable styrol polymers that can be processed to form hard foamed material having a low density and containing at least one foaming agent for said purpose. Said polymers contain at least aluminum in the form of particles to improve their heat insulating properties. The styrol polymer particles exhibit a fine cellular structure after expansion. The aluminum particles are homogeneously distributed and incorporated as infrared ray reflecting material. The main part of said aluminum particles have a laminar shape, the size of which ranges from 1 to 15 μ m. The styrol polymer particles produced as described above can be foamed to form polystyrol particle foamed materials having a maximum density of 30 g/l and improved heat insulating properties.

(57) Zusammenfassung

Teilchenförmige, expandierbare Styrolpolymerisate, die zur Hartschaumstoffen geringer Dichte verarbeitbar sind, und hiefür zumindest ein Treibmittel enthalten, weisen zur Verbesserung ihrer Wärmedämmeigenschaften zumindest Aluminium in Teilchenform auf. Die Styrolpolymerisatteichen haben nach der Expansion eine feine Zellstruktur und enthalten die Aluminiumteilchen in homogener Verteilung als Infrarotstrahlen reflektierendes Material eingearbeitet. Der Hauptanteil dieser Aluminiumteilchen weist Plättchenform mit Abmessungen auf, die zwischen 1 und 15 µm liegen. So hergestellte Styrolpolymerisatteilchen lassen sich zu Polystyrolpartikelschaumstoffen aufschäumen, die eine Dichte von höchstens 30 g/l aufweisen und verbesserte Wärmedämmeigenschaften haben.

TO CONTRACT CONTRACT OF THE PARTY OF THE PAR

LEDIGLICH ZUR INFORMATION

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

AL	Albanien	ES	Spanien	LS	Lesotho	SI	Slowenien
AM	Armenien	FI	Finnland	LT	Litauen	SK	Slowakei
AТ	Österreich	FR	Frankreich	LU	Luxemburg	SN	Senegal
AU	Australien	GA	Gabun	LV	Lettland	SZ	Swasiland
AZ	Aserbaidschan	GB	Vereinigtes Königreich	MC	Мопасо	TD	Tschad
BA	Bosnien-Herzegowina	GE	Georgien	MD	Republik Moldau	TG	Togo
BB	Barbados	GH	Ghana	MG	Madagaskar	ТJ	Tadschikistan
BE	Belgien	GN	Guinea	MK	Die ehemalige jugoslawische	TM	Turkmenistan
BF	Burkina Faso	GR	Griechenland		Republik Mazedonien	TR	Türkei
BG	Bulgarien	HU	Ungam	ML	Mali	TT	Trinidad und Tobago
BJ	Benin	IE	Irland	MN	Mongolei	UA	Ukraine
BR	Brasilien	IL	Israel	MR	Mauretanien	UG	Uganda
BY	Belarus	IS	Island	MW	Malawi	US	Vereinigte Staaten von
CA	Kanada	IT	Italien	MX	Mexiko		Amerika
CF	Zentralafrikanische Republik	JP	Japan	NE	Niger	UZ	Usbekistan
CG	Kongo	KE	Kenia	NL	Niederlande	VN	Vietnam
CH	Schweiz	KG	Kirgisistan	NO	Norwegen	YU	Jugoslawien
CI	Côte d'Ivoire	KP	Demokratische Volksrepublik	NZ	Neuseeland	ZW	Zimbabwe
CM	Kamerun		Korea	PL	Polen		
CN	China	KR	Republik Korea	PT	Portugal		
CU	Kuba	KZ	Kasachstan	RO	Rumānien		
CZ	Tschechische Republik	LC	St. Lucia	RU	Russische Föderation		
DE	Deutschland	LI	Liechtenstein	SD	Sudan		
DK	Dänemark	LK	Sri Lanka	SE	Schweden		
EE	Estland	LR	Liberia	SG	Singapur		

Teilchenförmige, expandierbare Styrolpolymerisate und Verfahren zu ihrer Herstellung

Die Erfindung bezieht sich auf teilchenförmige, expandierbare Styrolpolymerisate (EPS), die zu Hartschaumstoffen mit feiner Zellstruktur und geringer Dichte verarbeitbar sind und hiefür zumindest ein Treibmittel enthalten und zur Verbesserung ihrer Wärmedämmeigenschaften zumindest Aluminium in Teilchenform aufweisen. Weiters bezieht sich die Erfindung auf ein Verfahren zur Herstellung solcher expandierbarer Styrolpolymerisatteilchen.

5

10

15

20

25

30

35

Styrolpolymerisatteilchen (EPS) der eingangs geschilderten Art sind bekannt (EP 620.246 A). Hiebei handelt es sich um treibmittelhaltige Polystyrolpartikel, die sich durch Erwärmen mit Wasserdampf (Vorschäumprozess) unter Vervielfachung ihres Volumens expandieren lassen und anschließend durch Verschweißung zu beliebig geformten insbesondere Blöcken, verarbeitet werden können. Bevorzugte Formteilen, Anwendungsgebiete solcher Polystyrolpartikelschäume sind Wärmedämmstoffe, z.B. für Gebäudefassaden, Kühlhäuser oder Verpackungsmaterialien, wobei die Wärmedämmwirkung des Schaumstoffes von entscheidender Bedeutung für seine Qualität ist. Es ist daher bereits vorgeschlagen worden, die Wärmeleitfähigkeit von Polystyrolhartschaumstoffen dadurch zu reduzieren, dass dem Styrolpolymerisat Stoffe zugesetzt werden, welche die Durchlässigkeit von Infrarotstrahlung durch den Schaumstoff vermindern. Hiefür ist es aus der eingangs erwähnten Literaturstelle bekannt, athermane Materialien, das sind Infrarotstrahlen absorbierende Materialien, einzusetzen, wobei Metalloxide, z.B. Al₂O₃, Nichtmetalloxide, Aluminiumpulver oder Ruß bzw. Graphit. vorgeschlagen werden. Insbesondere sollen diese Zusätze für eine Oberflächenbeschichtung der Polystyrolpartikel Verwendung finden. Diese Vorgangsweise hat jedoch den Nachteil, dass ein undefinierbarer Anteil dieser Beschichtung bei der Verarbeitung verlorengeht, was eine ebenso undefinierte Reduktion der Wärmedämmung und darüber hinaus eine Verunreinigung der Abwässer mit sich bringt. Weiters führt eine solche Oberflächenbeschichtung der Polystyrolpartikel aufgrund der Trennwirkung zu einer wesentlichen Verschlechterung der Verschweißeigenschaften der Polystyrolteilchen, was wiederum zu einer erhöhten Wärmeleitfähigkeit und zu einer Verminderung der mechanischen Festigkeit des Hartschaumstoffteiles führt.

Aus der eingangs erwähnten Literaturstelle ist es zwar auch bekannt, die athermanen Materialien in das noch nicht aufgeschäumte Granulat zur Bildung des Polystyrolhartschaumes einzubetten, insbesondere zusammen mit einem Treibmittel. Die erzielten Ergebnisse waren jedoch bisher nicht befriedigend, denn es traten Schwierigkeiten bei der Einbettung der athermanen Materialien auf. Üblicherweise wird nämlich EPS mittels

WO 00/43442 PCT/AT00/00013

Suspensionspolymerisation hergestellt. Dabei wird Styrol unter Rühren in Wasser suspendiert, wodurch sich Tröpfchen bilden, die mittels Reaktionsstartern polymerisiert und im Laufe des Verfahrens mit Treibmittel imprägniert werden. Die athermanen Materialien können jedoch hiebei nicht einfach zugegeben werden, da diese Stoffe unlöslich in Styrol sind und deshalb von den Tröpfchen nicht aufgenommen werden. Aber auch die Einbringung der athermanen Stoffe in EPS durch Mischung dieser Stoffe mit Polystyrolschmelze mittels eines Extrusionsprozesses hat nicht befriedigt. Dabei wird Polystyrol gemeinsam mit den Additiven und Treibmittel auf Temperaturen über dem Glaspunkt von Polystyrol erhitzt, durch Friktion vermischt, gekühlt und durch eine Lochdüse gedrückt. Sofort nach dem Verlassen der Düse muss der extrudierte Strang mittels eines Kaltwasserbades gekühlt werden, um ein Aufschäumen zu verhindern. Der abgekühlte Strang wird dann in kurze Einzelpartikel granuliert. Hiebei tritt jedoch das Problem auf, dass die vorgeschlagenen athermanen Stoffe einen stark keimbildenden Effekt haben, sodass ein Aufschäumen des Materiales nach dem Verlassen der Düse nicht verhindert werden kann. Dieser keimbildende Effekt hängt von der Konzentration, der Größe, der Form und der Zusammensetzung der Keimbildner ab, sowie von der Schmelzetemperatur, dem Treibmittelgehalt und der Rezeptur des verwendeten Polystyrols.

5

10

15

20

25

30

35

Diese Eigenschaften der athermanen Stoffe machen es notwendig, Unterwassergranulierung unter Druck durchzuführen, um ein Aufschäumen der Granulatteilchen zu verhindern. Dies bedingt einen wesentlich größeren Aufwand als die übliche Stranggranulierung und es ist mit dieser Art der Granulierung eine Erzielung von Granulat-Teilchengrößen unter 1 mm nicht möglich. Die Beimengung von Ruß bzw. Graphit erhöht zudem die Brennbarkeit des Partikelschaumes, was eine Erhöhung des Zusatzes an Flammschutzsystemen notwendig macht, um für den Baubereich zulässige Brandeigenschaften erreichen zu können. Weiters ist zu beobachten, dass es duch die Eigenschaft der athermane Materialien, insbesondere Ruß oder Graphit, die Infrarotstrahlung zu absorbieren, bei der Lagerung der hergestellten Dämmstoffplatten im Freien bei Sonneneinstrahlung zu einer starken Erwärmung und damit zu einer Verformung dieser Platten kommen kann.

Die beschriebene Vorgangsweise (EPS) unterscheidet sich grundsätzlich von der Produktion von Schaumstoffplatten (XPS), wobei der Schaumbildungsprozeß direkt an der Düse des Extruders stattfindet (DE 195 45 097 A1). Bei dieser Art des Verfahrens werden der zu extrudierenden Kunststoffmasse gezielt anorganische Stoffe zugesetzt, um ein Aufschäumen der Kunststoffmasse nach Verlassen der Düse zu bewirken. Bei dieser Verfahrensführung stellt die Beimengung athermaner Stoffe, welche genau diese Aufschäumung bewirken, somit kein Problem dar.

5

10

15

20

25

30

35

Die setzt sich zur Aufgabe, teilchenförmige, Erfindung expandierbare Styrolpolymerisate (EPS) der eingangs beschriebenen Art so zu verbessern, dass die geschilderten Schwierigkeiten vermieden sind, insbesondere dass es bei der Einbettung der wärmedämmenden Aluminiumteilchen nicht zu Schwierigkeiten kommt und dass die Wärmedämmeigenschaften und die Sonnenstrahlenempflindlichkeit der hergestellten Styrolpolymerisate verbessert werden. Die Erfindung löst diese Aufgabe dadurch, dass die Styrolpolymerisatteilchen die Aluminiumteilchen in homogener Verteilung als Infrarotstrahlen reflektierendes Material eingearbeitet enthalten, wobei der Hauptanteil der Aluminiumteilchen Plättchenform mit Abmessungen aufweist, die zwischen 1 und 15 µm liegen. Überraschenderweise zeigt es sich, daß die Beimengung von Aluminiumplättchen der erwähnten Größe bei homogener Verteilung im Styrolpolymerisat nicht nur die feine Zellstruktur der expandierten Styrolpolymerisatteilchen, welche durch geeignete organische Keimbildner, z.B. Paraffine, Chlorparaffine, Fischer-Tropsch-Wachse sowie Ester und Amide von Fettsäuren, erzielt wird, in keiner Weise beeinträchtigt, sondern dass sich auch wesentlich verbesserte Wärmedämmeigenschaften der Styrolpolymerisatteilchen bzw. der daraus hergestellten Hartschaumstoffe ergeben. Die Aluminiumteilchen wirken somit nicht störend bei der Keimbildung. Vor allem aber bewirkt die Plättchenform der Aluminiumteilchen, dass die Aluminiumteilchen im Vergleich zur Kugelform eine größere Oberfläche aufweisen und dadurch stark reflektierend auf die einfallende Infrarotstrahlung einwirken. Die günstigsten Ergebnisse ergeben sich hiebei, wenn der Größtdurchmesser der Aluminjumplättchen zumindest das 10-fache der mittleren Plättchenstärke beträgt. Auf die starke Reflexionswirkung der eingebetteten Aluminiumplättchen ist es zurückzuführen, dass der beschriebene Nachteil bekannter, aus EPS-Styrolpolymerisatteilchen hergestellter Dämmstoffplatten, sich bei Sonneneinstrahlung stark zu erwärmen und damit zu verformen, vermieden ist, da infolge der Reflexion der Infrarotstrahlung keine nennenswerte Absorption derselben stattfindet.

Die homogene Zellstruktur in erfindungsgemäßer Weise erhaltener expandierter Schaumstoffperlen weist eine durchschnittliche Zellgröße von etwa 0,1 mm auf, die Zellgröße schwankt zwischen etwa 0,05 und 0,2 mm.

Im Zusammenhang mit der vorliegenden Erfindung sind unter "Styrolpolymerisate" Polystyrol und Mischpolymerisate des Styrols mit anderen Verbindungen, z.B.α-Methylstyrol, Acrylnitril, Maleinsäureanhydrid, Butadien, Divinylbenzol, zu verstehen.

Als Treibmittel kommen unter Normalbedingungen gasförmige oder flüssige Kohlenwasserstoffe in Frage, die einen Siedepunkt unterhalb des Erweichungspunktes des Polymerisates haben. Typische Vertreter dieser Verbindungen sind Propan, Butan, Pentan und Hexan.

Weiters können alle üblichen Hilfsstoffe, wie Nukleierungsmittel, Flammschutzmittel, UV-Stabilisatoren, Weichmacher, Pigmente, Antioxidantien und Säurefänger eingesetzt werden.

5

10

15

20

25

30

35

Ein weiterer Vorteil der Erfindung besteht darin, dass sie es ermöglicht, den Anteil an die Infrarotstrahlung beeinflussenden Mitteln bei gleichem oder sogar verbessertem Effekt geringer zu halten, als dies bisher möglich war. So ist es im Rahmen der Erfindung möglich, daß die Styrolpolymerisatteilchen weniger als 6 Gew-%, bezogen auf das Polymere, an Aluminiumteilchen enthalten, vorzugsweise 0,05 bis 4 Gew-%, insbesondere 0,3 bis 1 Gew-%. Dadurch wird nicht nur eine Ersparnis an dem einzubringenden Material erzielt, sondern es wirken die beschriebenen Aluminiumplättchen in der geringen Konzentration nicht störend bei der Keimbildung, zeigen aber anderseits eine ausreichende Reflexion des infraroten Lichtes.

Im Sinne der Erfindung hat der wesentliche Anteil der Aluminiumteilchen Abmessungen zwischen 1 und 15 μm. Die Aluminiumplättchen, welche unregelmäßig begrenzt, sehr glatt, plan und dünn sind, sind, haben Abmessungen, welche somit nicht in jeder Richtung gleich sind. Im Sinne der Erfindung sind die Größtabmessungen dem erwähnten Intervall zugrundezulegen. Bevorzugt ist es im Rahmen der Erfindung, wenn zumindest 95 % der Aluminiumteilchen eine größte Abmessung von höchstens 15 μm haben.

Wenngleich sich durch die Verwendung der Aluminiumplättchen in der beschriebenen Art bereits eine wesentliche Verbesserung der Wärmedämmeigenschaften ergibt, so bedeutet dies nicht, dass nicht noch weitere Verbesserungen durch die Verwendung zusätzlicher Materialien erzielbar sind. So ergeben sich erfindungsgemäß weitere Vorteile, wenn zusätzlich zu den plättchenförmigen Aluminiumteilchen noch weitere Infrarotstrahlen reflektierende bzw. die Wärmedämmeigenschaften erhöhende Materialien in Teilchenform in den Styrolpolymerisatteilchen homogen verteilt eingearbeitet enthalten sind. Als ein besonders geeignetes solches Material eignet sich im Rahmen der Erfindung Antimontrisulfid (Sb₂S₃). Hiebei ergibt sich nämlich ein synergistischer Effekt zwischen den Aluminiumplättchen und den Antimontrisulfidteilchen, da erstere reflektierend auf die Infrarotstrahlung einwirken, letztere hingegen vorwiegend absorbierend. Dies bringt Vorteile, wenn eine Absorption der Infrarotstrahlung gewünscht bzw. tolerabel ist. Zur Vergrößerung der Wirksamkeit ist es hiebei zweckmäßig, die Antimontrisulfidteilchen größer zu bemessen als die Aluminiumteilchen, wobei die Antimontrisulfidteilchen insbesondere eine Korngröße von 10 bis 60 μm aufweisen.

Es ist im Rahmen der Erfindung auch möglich, die Wärmedämmeigenschaften durch zusätzliche Beigabe von Ruß und/oder Graphit in Form feiner Teilchen zu steigern, wobei jedoch der Anteil des Rußes bzw. Graphits weniger als 2 Gew-%, bezogen auf das

Polymere, beträgt. Der geringe Ruß- bzw. Graphitanteil bedingt nur eine geringe Steigerung der Brennbarkeit der Styrolpolymerisatpartikel, was durch Zugabe üblicher Flammschutzsysteme kompensiert werden kann, etwa von Hexabromcyclododecan und eines Synergists (Dicumyl bzw. Dicumylperoxid).

5

10

15

20

25

30

35

Erfindungsgemäße Styrolpolymerisatpartikel lassen sich auf verschiedene Weise kostengünstig herstellen. Eine Variante des erfindungsgemäßen Verfahrens besteht darin, dass in einem Reaktor Styrol und/oder dessen Verbindungen mit zumindest einem Treibmittel polymerisiert wird und im Laufe der Polymerisation höchstens 6 Gew.-%, vorzugsweise höchstens 5 Gew.-%, insbesondere höchstens 4 Gew.-%, Aluminiumteilchen mit einem Hauptanteil in Plättchenform in Form eines Masterbatches, dessen Trägermaterial Polystyrol ist, beigegeben werden.

Eine andere Variante des erfindungsgemäßen Verfahrens besteht darin, dass in einem Extruder Styrolpolymerisate aufgeschmolzen und mit zumindest einem Treibmittel und Aluminiumteilchen mit einem Hauptanteil in Plättchenform vermischt und gemeinsam extrudiert werden, wobei der eingesetzte Aluminiumteilchenanteil höchstens 6 Gew.-%, vorzugsweise höchstens 5 Gew.-%, insbesondere höchstens 4 Gew.-% beträgt, wonach das Extrudat sofort abgekühlt und zur Teilchenform zerkleinert, insbesondere granuliert, wird. Diese sofortige Abkühlung vermeidet eine Aufschäumung der Teilchen. Hiebei kann die Extrusion als Druckunterwassergranulation durchgeführt werden, wobei es für diese im Rahmen der Erfindung tolerabel ist, den eingesetzten Aluminiumteilchenanteil höher als bei normaler Extrusion zu bemessen, also für Druckunterwassergranulation mit höchstens 6 Gew-%, bezogen auf das Polymer.

In erfindungsgemäßer Weise hergestellte, teilchenförmige, expandierbare Styrolpolymerisate, welche Aluminiumteilchen in homogener Verteilung enthalten, können in an sich üblicher Weise auf eine Dichte von höchstens 30 g/l aufgeschäumt werden. Die so hergestellten Polystyrolschaumstoffkörper sind also sehr leicht, dennoch sehr fest. Ihre Wärmedämmeigenschaften sind im Vergleich zu bekannten Produkten wesentlich besser.

Erfindungsgemäß hergestellte Polystyrolpartikelschaumstoffe können für Wärmedämmzwecke aller Art in vorteilhafter Weise Verwendung finden, insbesondere für die Wärmedämmung von Gebäuden und Gebäudeteilen, z.B. Fassaden, Kühlhäusern usw., weiters für die thermische Isolierung von Maschinen und Geräten aller Art oder als Verpackungsmaterialien für solche Gegenstände, welche gegen Wärmeeinwirkung geschützt werden sollen.

Die folgenden Beispiele erläutern die Erfindung näher. Die erwähnten Prozentangaben beziehen sich auf das Gewicht des Polymers.

Beispiel 1:

5

10

15

20

25

30

35

Polystyrol mit einem Molekulargewicht von etwa 220.000 wurde in einem Extruder gemeinsam mit 1,3 % Hexabromcyclododecan und 0,2 % Dicumyl als Flammschutzmittel und 0,3% Aluminiumplättchen mit einer durchschnittlichen Größtabmessung von 3 µm aufgeschmolzen, mit 6,3 % Pentan versetzt, auf etwa 120°C abgekühlt und durch eine Lochdüse gepresst. Die entstehenden Stränge mit einem Durchmesser von ca. 0,8 mm wurden in einem Kaltwasserbad unter die Erstarrungstemperatur gekühlt und anschließend mittels Stranggranulator granuliert.

Das entstandene Granulat wurde mit für diesen Zweck üblichen Coatingmaterialien (Glycerinoder Zinkstearate) beschichtet, um ein Verkleben während Aufschäumvorganges zu verhindern und anschließend in einem diskontinuierlichen Vorschäumer auf eine Dichte von 15 g/l vorgeschäumt. Die Zellstruktur der so erhaltenen Schaumstoffperlen war homogen und wies eine durchschnittliche Zellgröße von etwa 0,1 mm auf. Nach einer Zwischenlagerung von 24 Stunden wurden Blöcke mit den Maßen 600x600x190 mm hergestellt und mittels Heißdraht zu Platten mit einer Dicke von 50 mm geschnitten. Die beiden mittleren Platten wurden nach Lagerung bis zur Gewichtskonstanz für die Messung der Wärmeleitfähigkeit herangezogen.

So hergestellte Platten wiesen eine Wärmeleitzahl von 35,8 mW/m.K auf.

Beispiel 2:

Es wurde wie in Beispiel 1 vorgegangen, jedoch betrug die durchschnittliche Größtabmessung der eingesetzten Aluminiumplättchen 5 µm.

Die so hergestellten Platten wiesen eine Wärmeleitzahl von 34,2 auf.

Beispiel 3:

Es wurde wie in Beispiel 1 vorgegangen, jedoch Aluminiumplättchen mit einer durchschnittlichen maximalen Größtabmessung von 15 µm verwendet.

Die so hergestellten Platten wiesen eine Wärmeleitzahl von 36,5 mW/m.K auf.

Beispiel 4:

Es wurde wie in Beispiel 1 vorgegangen, jedoch die Konzentration des Aluminiumplättchenanteiles mit 0,8 % gewählt.

Die so hergestellten Platten wiesen eine Wärmeleitzahl von 34,3 mW/m.K auf.

Beispiel 5:

Es wurde wie in Beispiel 2 vorgegangen, jedoch die Konzentration des eingesetzten Aluminiumplättchenanteiles mit 0,8 % gewählt.

So hergestellte Platten wiesen eine Wärmeleitzahl von 32,6 mW/m.K auf.

Beispiel 6:

5

10

15

Es wurde wie in Beispiel 3 vorgegangen, jedoch die Konzentration des eingesetzten Aluminiumanteiles mit 0,8 % bemessen.

So hergestellte Platten wiesen eine Wärmeleitzahl von 35,0 mW/m.K auf.

Beispiel 7:

Es wurde wie in Beispiel 1 vorgegangen, jedoch zusätzlich zu den Aluminiumplättchen noch 0,5 % Antimontrisulfidteilchen mit einer durchschnittlichen Korngröße von etwa 35 μm eingesetzt.

So hergestellte Platten wiesen eine Wärmeleitzahl von 33,8 mW/m.K auf.

Beispiel 8:

Es wurde wie in Beispiel 1 vorgegangen, jedoch zusätzlich zu den 20 Aluminiumplättchen noch 0,5 % feine Rußteilchen eingesetzt.

So hergestellte Platten wiesen eine Wärmeleitzahl von 34,0 mW/m.K auf.

Beispiel 9:

Es wurde wie in Beispiel 1 vorgegangen, jedoch zusätzlich zu den 25 Aluminiumplättchen noch 0,5 % feine Graphitteilchen eingesetzt.

So hergestellte Platten wiesen eine Wärmeleitzahl von 34,2 mW/m.K auf

Beispiel 10:

35

Zu Vergleichszwecken wurde wie in Beispiel 1 vorgegangen, jedoch ohne Zusatz von 30 Aluminiumplättchen.

So hergestellte Platten wiesen eine Wärmeleitzahl von 37,3 mW/m.K auf.

Aus den Ergebnissen zeigt sich, dass die Wärmeleitzahl sich mit der Teilchengröße der eingesetzten Aluminiumplättchen ändert und die besten Werte etwa bei einer durchschnittlichen Teilchenabmessung von 5 µm ergibt. Ebenso ändert sich die Wärmeleitzahl mit der Konzentration der eingesetzten Aluminiumteilchen, wobei ein Anteil von 0,8 % an Aluminiumplättchen (bei sonst gleicher Verfahrensführung) bessere Werte

erbrachte als ein Anteil von bloß 0,3 %. Auch letzterer Anteil erbrachte jedoch wesentlich bessere Werte als eine Plattenherstellung ohne Aluminiumteilchen.

Die bei den Versuchen produzierten Materialien zeigten aufgrund der geringen Konzentration an Aluminium keinerlei Verschlechterung der Brandeigenschaften und keinerlei Aufschäumung während der Produktion des Rohstoffgranulates.

5

10

Auch eine Reduktion der Verschweißungsgüte oder der mechanischen Eigenschaften konnte nicht beobachtet werden.

Weiters zeigte sich, dass der Einsatz von Aluminiumplättchen, welche im Gegensatz zu Kohlenstoff als Infrarotreflektor wirken, keine erhöhte Erwärmung durch Bestrahlung mit Sonnenlicht bewirkt.

Das Material, welches mit Aluminiumteilchen der Plättchengröße 5 µm und einer Konzentration von 0,8 % hergestellt wurde, weist eine Isolierwirkung auf, die der Wärmeleitfähigkeitsgruppe 035 entspricht.

Patentansprüche:

- Teilchenförmige, expandierbare Styrolpolymerisate (EPS), die zu Hartschaumstoffen mit feiner Zellstruktur und geringer Dichte verarbeitbar sind, und hiefür zumindest ein Treibmittel enthalten und zur Verbesserung ihrer Wärmedämmeigenschaften zumindest Aluminium in Teilchenform als Infrarotstrahlen dämmendes Material aufweisen, dadurch gekennzeichnet, dass die Styrolpolymerisatteilchen die Aluminiumteilchen in homogener Verteilung als Infrarotstrahlen reflektierendes Material eingearbeitet enthalten, wobei der Hauptanteil der Aluminiumteilchen Plättchenform mit Abmessungen aufweist, die zwischen 1 und 15 µm liegen.
- Styrolpolymerisate nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass der
 Größtdurchmesser der Aluminiumplättchen zumindest das 10-fache der mittleren
 Plättchenstärke beträgt.
 - 3. Styrolpolymerisate nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, dass sie weniger als 6 Gew.-% bezogen auf das Polymere, vorzugsweise 0,05 bis 4 Gew.-%, insbesondere 0,3 bis 1 Gew.-% Aluminiumteilchen enthalten.
 - Styrolpolymerisate nach einem der Ansprüche 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, dass zumindest 95% der Aluminiumteilchen eine größte Abmessung von höchstens 15μm haben.

25

20

5. Styrolpolymerisate nach einem der Ansprüche 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, dass zusätzlich zu den Aluminiumteilchen noch weitere, Infrarotstrahlen dämmende bzw. die Wärmedämmeigenschaften erhöhende Materialien in Teilchenform in den Styrolpolymerisatteilchen homogen verteilt eingearbeitet enthalten sind.

30

- 6. Styrolpolymerisate nach Anspruch 5, dadurch gekennzeichnet, dass Antimontrisulfidteilchen in den Styrolpolymerisatteilchen enthalten sind.
- Styrolpolymerisate nach Anspruch 6, dadurch gekennzeichnet, dass die
 Antimontrisulfidteilchen größer sind als die Aluminiumteilchen und insbesondere eine Korngröße von 10 bis 60 µm aufweisen.

8. Styrolpolymerisate nach Anspruch 5, dadurch gekennzeichnet, dass Ruß und/oder Graphit in Form feiner Teilchen in den Styrolpolymerisatteilchen enthalten sind, wobei der Anteil des Rußes und Graphits weniger als 2 Gew.-%, bezogen auf das Polymere, beträgt.

5

10

15

- 9. Styrolpolymerisate nach einem derAnsprüche 1 bis 8, dadurch gekennzeichnet, dass sie zu Polystryrolschaumstoffpartikeln mit homogener Zellstruktur und einer Zellgröße zwischen 0,05 und 0,2 mm verarbeitbar sind.
- 10. Verfahren zur Herstellung teilchenförmiger, expandierbarer Styrolpolymerisate nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass in einem Reaktor Styrol und/oder dessen Verbindungen mit zumindest einem Treibmittel polymerisiert wird und im Laufe der Polymerisation höchstens 6 Gew.-%, vorzugsweise höchstens 5 Gew.-%, insbesondere höchstens 4 Gew.-% Aluminiumteilchen mit einem Hauptanteil in Plättchenform, in Form eines Masterbatches, dessen Trägermaterial Polystyrol ist, beigegeben werden.
- 11. Verfahren zur Herstellung teilchenförmiger, expandierbarer Styrolpolymerisate nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass in einem Extruder Styrolpolymerisate aufgeschmolzen und mit zumindest einem Treibmittel und Aluminiumteilchen mit einem Hauptanteil in Plättchenform vermischt und gemeinsam extrudiert werden, wobei der eingesetzte Aluminiumteilchenanteil höchstens 6 Gew.-%, vorzugsweise höchstens 5 Gew.-%, insbesondere höchstens 4 Gew.-%, beträgt, wonach das Extrudat sofort abgekühlt und zur Teilchenform zerkleinert, insbesondere granuliert, wird.
 - 12. Verfahren nach Anspruch 11, dadurch gekennzeichnet, dass die Extrusion als Druckunterwassergranulation durchgeführt wird.
- 30 13. Verfahren zur Herstellung von Polystryrolschaumstoffen, dadurch gekennzeichnet, dass Aluminiumteilchen in homogener Verteilung enthaltende, expandierbare Styrolpolymerisatteilchen nach Anspruch 1 auf eine Dichte von höchstens 30g/l aufgeschäumt werden.
- 35 14. Polystyrolpartikelschaumstoffe aus EPS-Teilchen, dadurch gekennzeichnet, dass sie eine Dichte von höchstens 30g/l aufweisen und Aluminiumplättchen in homogener Verteilung beinhalten, deren Hauptanteil Abmessungen zwischen 1 und 15 μm hat.

- 15. Polystyrolpartikelschaumstoffe nach Anspruch 14, dadurch gekennzeichnet, dass der Anteil an Aluminiumplättchen weniger als 6 Gew.-%, bezogen auf das Polymere, vorzugsweise 0,05 bis 4 Gew.-%, insbesondere 0,3 bis 1 Gew.-%, beträgt.
- 5 16. Polystyrolpartikelschaumstoffe, dadurch gekennzeichnet, dass sie Aluminiumteilchen und Antimontrisulfidteilchen in homogener Verteilung beinhalten

10

17. Verwendung von Polystyrolpartikelschaumstoffen nach Anspruch 14,15 oder 16 für Wärmedämmzwecke.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Inte: onal Application No PCT/AT 00/00013

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER IPC 7 C08J9/00 C08k C08K3/08 C08J9/16 //C08L25/06 According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC **B. FIELDS SEARCHED** Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) IPC 7 C08J C08K Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used) C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT Relevant to claim No. Category ° Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages JP 07 330997 A (MATSUSHITA ELECTRIC IND CO 1 LTD) 19 December 1995 (1995-12-19) 2-17 page 4, column 5; table 1 Α & PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 096, no. 004, 30 April 1996 (1996-04-30) JP (MATSUSHITA ELECTRIC IND. CO. LTD.) abstract Υ PATENT ABSTRACTS OF JAPAN 1 vol. 005, no. 053 (M-063), 14 April 1981 (1981-04-14) & JP 56 010432 A (ACHILLES CORP), 2 February 1981 (1981-02-02) 2-17 abstract Further documents are listed in the continuation of box C. Patent family members are listed in annex. Special categories of cited documents: "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but "A" document defining the general state of the lart which is not cited to understand the principle or theory underlying the considered to be of particular relevance invention "E" earlier document but published on or after the international "X" document of particular relevance; the claimed invention filing date cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another "Y" document of particular relevance; the claimed invention citation or other special reason (as specified) cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such docu-"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or ments, such combination being obvious to a person skilled other means document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed in the art. "&" document member of the same patent family Date of the actual completion of the international search Date of mailing of the international search report 27 June 2000 06/07/2000 Name and mailing address of the ISA **Authorized officer** European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo rd. Oudot, R Fax: (+31-70) 340-3016

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Inte. onal Application No

•		PCT/AT 00/00013
	ation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT	
ategory °	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
	DE 195 45 097 A (BASF AG) 5 June 1997 (1997-06-05) claims 1,3,4,7	8
	DE 44 06 613 A (KE KELIT KUNSTSTOFFWERK GMBH) 20 October 1994 (1994-10-20) claims 	6,7,16

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

Inti Ional Application No
PCT/AT 00/00013

Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)	Publication date
JP 07330997	Α	19-12-1995	NONE	
JP 56010432	Α	02-02-1981	JP 1285041 C JP 60005161 B	09-10-1985 08-02-1985
DE 19545097	Α	05-06-1997	EP 0778309 A	11-06-1997
DE 4406613	Α	20-10-1994	AT 399341 B AT 74593 A	25-04-1995 15-09-1994

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Inter onales Aktenzeichen PCT/AT 00/00013

		FUI	/AT 00/00013
A. KLASSII IPK 7	FIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES C08J9/00 C08K3/08 C08J9/16	//C08L25/06	
	temationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klas	sifikation und der IPK	
	RCHIERTE GEBIETE		
IPK 7	ter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbo COSJ COSK	ee)	
Recherchier	te aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, so	weit diese unter die recherchier	ten Gebiete fallen
Während de	r internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (N	ame der Datenbank und evtl. v	erwendete Suchbegriffe)
C. ALS WE	SENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN		
Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angab	e der in Betracht kommenden T	eile Betr. Anspruch Nr.
Υ	JP 07 330997 A (MATSUSHITA ELECTR LTD) 19. Dezember 1995 (1995-12-1		1
А	Seite 4, Spalte 5; Tabelle 1 & PATENT ABSTRACTS OF JAPAN	9)	2-17
	vol. 096, no. 004, 30. April 1996 (1996-04-30) JP (MATSUSHITA ELECTRIC IND. CO. Zusammenfassung	LTD.)	
Y	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 005, no. 053 (M-063), 14. April 1981 (1981-04-14)		1
Α	& JP 56 010432 A (ACHILLES CORP), 2. Februar 1981 (1981-02-02) Zusammenfassung		2-17
		-/	
entn	ere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu ehmen	Siehe Anhang Patentf	
"A" Veröffer aber n	e Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen : ntlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, icht als besonders bedeutsam anzusehen ist Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen	oder dem Prioritätsdatum v Anmeldung nicht kollidiert,	ie nach dem internationalen Anmeldedatum reröffentlicht worden ist und mit der sondern nur zum Verständnis des der Ien Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden
Anmel "L" Veröffer schein andere	dedatum veröffentlicht worden ist ntlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweilelhaft er- ien zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer en im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden	*X* Veröffentlichung von beson- kann allein aufgrund dieser arfinderischer Tätigkeit ber	derer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung Veröffentlichung nicht als neu oder auf uhend betrachtet werden derer Redeutung: die beanspruchte Erfindung
ausgel "O" Veröffer eine B "P" Veröffer	at die aus einem anderen beschderen Grand angegeben ist (wie	kann nicht als auf erfinders werden, wenn die Veröffen Veröffentlichungen dieser I	scher i atigkeit berunend betrachtet Hilchung mit einer oder mehreren anderen Kategorie in Verbindung gebracht wird und I Fachmann naheliegend ist
	Abschlusses der internationalen Recherche	Absendedatum des interna	tionalen Recherchenberichts
2	7. Juni 2000	06/07/2000	
Name und F	Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL – 2280 HV Rijswijk	Bevollmächtigter Bedienste	eter
•	NL - 2280 FV Fujswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl. Fax: (+31-70) 340-3016	Oudot, R	

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Inter onales Aktenzeichen
PCT/AT 00/00013

		00/00013
	ung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN	
(ategorie°	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A .	DE 195 45 097 A (BASF AG) 5. Juni 1997 (1997-06-05) Ansprüche 1,3,4,7	8
1	DE 44 06 613 A (KE KELIT KUNSTSTOFFWERK GMBH) 20. Oktober 1994 (1994-10-20) Ansprüche	6,7,16

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Inter nales Aktenzeichen
PCT/AT 00/00013

Im Recherchenberich angeführtes Patentdokun		Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
JP 07330997	A	19-12-1995	KEINE	
JP 56010432	Α	02-02-1981	JP 1285041 C JP 60005161 B	09-10-1985 08-02-1985
DE 19545097	Α	05-06-1997	EP 0778309 A	11-06-1997
DE 4406613	Α	20-10-1994	AT 399341 B AT 74593 A	25-04-1995 15-09-1994

This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning Operations and is not part of the Official Record.

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:				
☐ BLACK BORDERS				
☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES				
FADED TEXT OR DRAWING				
BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING				
☐ SKEWED/SLANTED IMAGES				
☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS				
☐ GRAY SCALE DOCUMENTS				
LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT				
REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY				

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

☐ OTHER: _____

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.